








GUIDING STRUCTURE REACTOR

Patent number: WO03076065
Publication date: 2003-09-18
Inventor: NEUMANN FRANK (DE); LOEWE HOLGER (DE);
 HESSEL VOLKER (DE); HARDT STEFFEN (DE)
Applicant: INST MIKROTECHNIK MAINZ GMBH (DE); NEUMANN
 FRANK (DE); LOEWE HOLGER (DE); HESSEL
 VOLKER (DE); HARDT STEFFEN (DE)
Classification:
 - international: B01J19/32; B01J10/02
 - european: B01J10/02; B01J19/32
Application number: WO2003EP02266 20030306
Priority number(s): DE20021010097 20020308

Also published as:

 EP1483049 (A1)
 DE10210097 (A1)

Cited documents:

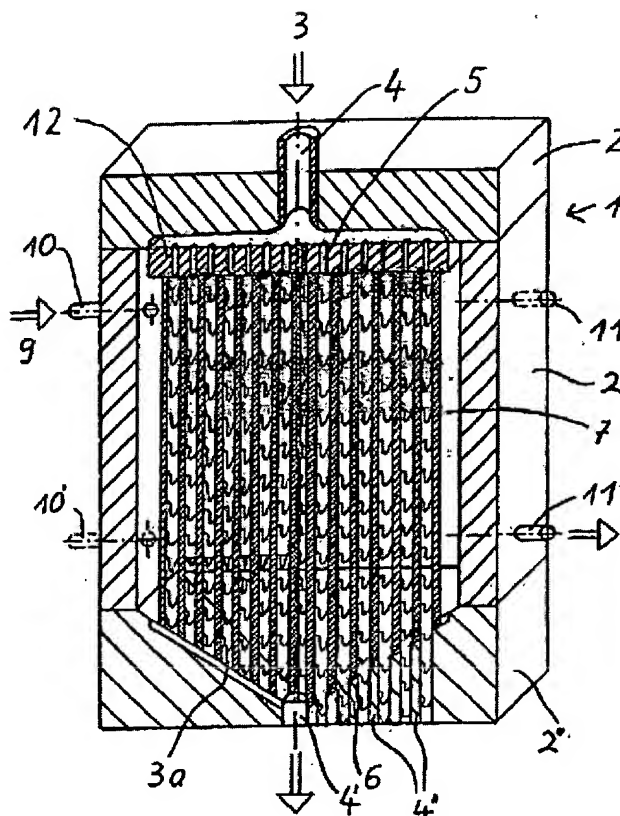
 WO0128648
 US4224257
 GB171507
 US2981665
 EP1163952
 more >>

BEST AVAILABLE COPY

Report a data error here

Abstract of WO03076065

The invention relates to a reactor with guiding structures for the production and guiding of liquid films (3a) or liquid drops through a reaction section in a reactor housing. In order to provide improved liquid phase reactors in comparison with prior art, enabling a shorter retention time distribution and/or concentration distribution, flexibility and evenly adjustable liquid films or liquid drops in addition to a higher material and/or temperature transition, the guiding structures (6) are embodied as wires, rods, strand profiles, strips, bands or hollow profiles extending in the reactor housing from a liquid feed to a liquid outlet.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

WO 03/076065 A1



(84) **Bestimmungsstaaten** (*regional*): europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

Führungsstruktureaktor

5

Die Erfindung betrifft einen Reaktor mit Führungsstrukturen für die Erzeugung und Leitung von Flüssigkeitsfilmen oder Flüssigkeitstropfen durch eine Reaktionsstrecke in einem Reaktorgehäuse. Speziell betrifft die Erfindung einen Reaktor für die Durchführung von Gas/Flüssig-Reaktionen, Flüssig/Flüssig-Reaktionen, Fest/Flüssig-Reaktionen oder nur Flüssig-Reaktionen, wie elektrochemischen Reaktionen, katalytischen Festphasenreaktionen usw.

10

Bekannte Reaktoren für chemische Flüssigphasenreaktionen führen Flüssigkeitsströme oder Flüssigkeitsfilme entlang eines Strömungsweges mit mindestens einer, häufig zwei oder drei flächigen Wandberührungen. Dabei wird die Flüssigkeit über eine glatte Oberfläche oder häufiger in Kanälen mit rundem oder zum Kanalboden hin spitz zulaufendem oder rechteckigem bzw. nutenförmigem Querschnitt oder auch in einem Rohr mit einer geschlossenen Wandfläche geleitet. In solchen Reaktoren werden Gas/Flüssig-, Flüssig/Flüssig-, Fest/Flüssig- oder nur Flüssig-Reaktionen durchgeführt.

15

Unter den Begriff der Reaktionen, wie er auch hierin verwendet wird, fallen nicht nur chemische Umsetzungen, sondern auch die Durchführung von Medienaustausch und Konzentrationsveränderungen in Lösungen sowie das Mischen, Erwärmen, Abkühlen und Verdampfen von Flüssigkeiten und Lösungen.

20

Ein Nachteil der bekannten Reaktoren ist die relativ kleine reaktive Oberfläche des Flüssigkeitsfilmes, die beispielsweise für den Kontakt mit einem Reaktionsgas zur Verfügung steht. Zudem führt die laminare Strömung in den Wandbereichen der Leitungswege durch Abbremsen der Strömungsgeschwindigkeit dazu, dass innerhalb des Flüssigkeitsfilmes unterschiedliche Strömungsgeschwindigkeiten in der Flüssigkeit vorherrschen, je nachdem, ob ein Flüssigkeitsbereich näher an einer Wandung oder weiter entfernt davon in der Nähe der Flüssigkeitsoberfläche strömt. Teile eines gleichzeitig in den Reaktor eingeleiteten Flüssigkeitsvolumens passieren die gleiche Reaktionsstrecke daher langsamer und mit einer längeren Verweilzeit in dem Reaktor als andere Flüssigkeitsanteile. Je größer die Unterschiede der Strömungsgeschwindigkeiten innerhalb des Flüssigkeitsfilmes sind, desto breiter ist die Verweilzeitverteilung.

25

30

35

Darüber hinaus haben Flüssigkeitsströmungswege mit hohem Wandberührungsanteil den Nachteil, dass nur ein entsprechend geringer Flüssigkeitsanteil an und in der Nähe der Flüssigkeitsoberfläche für Reaktionen, z. B. mit einem Gas, zur Verfügung steht. Es kommt bei einigen Reak-

- 2 -

- torbauweisen zwar zu einer Durchmischung der Flüssigkeit durch Verwirbelungen, und auch Diffusionseffekte können einen Austausch von Oberflächenflüssigkeit und tiefer strömenden Anteilen bewirken, jedoch sind diese Effekte für eine gleichmäßige Reaktionsführung häufig nicht ausreichend. Es kommt somit innerhalb des Flüssigkeitsfilmes zu Konzentrationsunterschieden von
- 5 Flüssigkeitsanteilen, die bereits der beabsichtigten Reaktion unterzogen wurden, und solchen, bei denen dies nicht der Fall ist. Unter Konzentrationsunterschieden sind hierin Unterschiede bezüglich chemisch umgesetzter Flüssigkeit selbst oder darin gelöster Stoffe, aber auch z. B. Temperaturunterschiede oder -gradienten zu verstehen.
- 10 Eine breite Verweilzeitverteilung und/oder eine breite Konzentrationsverteilung haben den Nachteil, dass bei einigen Reaktionen unerwünschte Reaktionsnebenprodukte oder Produktgemische entstehen, die gegebenenfalls eine weitere Aufreinigung, Konzentration oder ähnliches erfordern. Je enger die Verweilzeitverteilung und/oder die Konzentrationsverteilung in einem Flüssigkeitsstrom ist, desto genauer und spezifischer lässt sich die durchzuführende Reaktion steuern.
- 15 Ein weiterer Nachteil der bekannten Reaktoren besteht darin, dass Form und Dicke des Flüssigkeitsstromes bzw. -filmes aufgrund der fest vorgegebenen Strukturen für die Führung der Flüssigkeit gar nicht oder nur sehr begrenzt variabel eingestellt und damit bestimmten Reaktionsbedingungen und -anforderungen angepasst werden können.
- 20 Neben den oben beschriebenen Reaktoren sind auch solche mit frei fallenden Flüssigkeiten ohne Wandberührung bekannt. Hierbei entsteht jedoch kein für eine kontrollierte Reaktionsführung brauchbarer Flüssigkeitsfilm. Beispiele für solche Reaktoren sind Kühltürme oder Waschtürme, wie sie in der deutschen Offenlegungsschrift DE 1961426 beschrieben sind. Durch die Oberflächen
- 25 spannungskräfte der Flüssigkeiten entstehen hierbei unterschiedlich große frei fallende Tropfen bzw. Tröpfchen, die nur von der Schwerkraft angetrieben undefiniert und ungeführt nach unten fallen und eventuell mit einem anströmenden Gas in Kontakt gebracht werden können.
- 30 Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung bestand daher darin, gegenüber dem Stand der Technik verbesserte Flüssigphasenreaktoren bereitzustellen, die eine engere Verweilzeitverteilung und/oder Konzentrationsverteilung, flexibel und gleichmäßig einstellbare Flüssigkeitsfilme oder Flüssigkeitstropfen sowie einen hohen Stoff- und/oder Temperaturübergang zulassen.
- 35 Gelöst wird diese Aufgabe durch einen Reaktor bzw. einen Mikroreaktor der eingangs genannten Art, bei dem die Führungsstrukturen als Drähte, Stäbe, Strangprofile, Streifen, Bänder oder Hohlprofile ausgebildet sind und sich in dem Reaktorgehäuse von einer Flüssigkeitszuführung in Richtung zu einem Flüssigkeitsauslass erstrecken.

- 3 -

Unter Reaktorgehäuse im Sinne dieser Erfindung ist ein geschlossenes Gehäuse, ein offenes Gehäuse oder aber auch ein einfacher Rahmen oder eine Aufhängung für die Führungsstrukturen zu verstehen.

- 5 Vorteilhaft ist der Abstand benachbarter Führungsstrukturen bei dem erfindungsgemäßen Reaktor so gewählt, dass die Flüssigkeit zwischen den benachbarten Führungsstrukturen einen zusammenhängenden Flüssigkeitsfilm oder alternativ einzelne Tropfen ausbilden kann. Die in dem erfindungsgemäßen Reaktor gebildeten Flüssigkeitsfilme und Tropfen sind gleichmäßig und in ihren Parametern flexibel einstellbar. Damit lassen sich beispielsweise exakt definierte chemische Reaktionen mit einer oder mehreren allseitig anströmenden Gaskomponenten mit nur sehr geringem Aufwand durchführen. Durch die neuartige Flüssigkeitsführung lässt sich eine enge Verweilzeitverteilung realisieren und ein hoher Stoff- und/oder Wärmeübergang gewährleisten. Die Führungs- bzw. Leitungsstrukturen des erfindungsgemäßen Reaktors erlauben einen funktionellen und universellen Einsatz für einen Stoffaustausch zwischen zwei oder mehreren Medien und/oder für die Durchführung von chemischen Reaktionen dieser Medien miteinander. Mit dem Reaktor lassen sich auch Kinetik- und/oder Verweilzeitbestimmungen für diese Medien im flüssigen und/oder gasförmigen Zustand durchführen.

- Der erfindungsgemäße Reaktor unterscheidet sich von bekannten Reaktoren, beispielsweise auch bekannten Fallfilmreaktoren, darin, dass der Flüssigkeitsfilm nicht in Kanälen mit großflächiger Wandberührung strömt, sondern die flüssige Komponente zwischen mindestens zwei Führungsstrukturen, wie beispielsweise Drähten, aufgrund der Kapillarkräfte aufgespannt und geführt wird. Der Flüssigkeitsfilm bewegt sich z. B. mit Hilfe der Schwerkraft entlang dieser Führungsstrukturen. Alternativ kann die Flüssigkeit auch an den Führungsstrukturen als Tropfen mit nur sehr geringer Oberflächenberührung abrollen bzw. geführt werden. Tropfen können dabei mit zwei oder mehr Führungsstrukturen, aber auch mit nur einer einzigen Führungsstruktur, z. B. einem einzelnen Draht, in Kontakt sein.

- Ein weiterer Vorteil des erfindungsgemäßen Reaktors gegenüber bekannten Anordnungen besteht darin, dass er relativ einfach und schnell zu reinigen und zu warten ist, was Zeit und Kosten einspart.

- Bei einer besonders bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors sind jeweils wenigstens zwei benachbarte der als Drähte, Stäbe, Strangprofile, Streifen, Bänder oder Hohlprofile ausgebildeten Führungsstrukturen im wesentlichen parallel und in einem Abstand zueinander angeordnet. Dadurch wird der Flüssigkeitsfilm oder auch der Tropfen im wesentlichen gleichmäßig über die gesamte Reaktionsstrecke geführt. Besonders zweckmäßig ist es insbesondere bei einer

parallelen Anordnung der Führungsstrukturen, wenn die Führungsstrukturen in dem Reaktorgehäuse vorgespannt sind.

Bei einer alternativen Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors sind jeweils wenigstens
5 zwei benachbarte Führungsstrukturen in Längsrichtung von der Flüssigkeitszuführung in Richtung
zu dem Flüssigkeitsauslass mit zunehmendem oder abnehmendem Abstand zueinander angeordnet.
Dies ermöglicht eine Veränderung der Führungseigenschaften über die Länge der Reaktions-
strecke, d. h. beispielsweise eine Veränderung der Form und/oder Dicke des Flüssigkeitsfilmes
und damit einhergehend eine Veränderung der Strömungseigenschaften, der Verweilzeitverteilung,
10 der Konzentrationsverteilung und/oder der für Reaktionen zur Verfügung stehenden Flüssigkeits-
oberfläche.

Bei einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors sind Mittel
zum variablen Einstellen des Abstandes zwischen benachbarten Führungsstrukturen vorgesehen.
15 Der erfindungsgemäße Reaktor bietet damit den Vorteil, die Reaktionsfläche von Flüssigkeitsober-
flächen in Reaktoren auf einfache Weise zu vergrößern oder auch zu verkleinern, falls dies erforderlich
ist. In dem Reaktor wird ein definierter gleichmäßig dünner Fallfilm bis zu Mikrometerdicke
stabil im nahezu freien Raum erzeugt. Die einzigen Wandberührungen an den Führungsstrukturen
sind gegenüber bekannten Reaktoren äußerst gering bzw. minimiert. Darüber hinaus ist es durch
20 manuelles oder motorgetriebenes Einstellen der Abstände der Führungsstrukturen zueinander
möglich, die Dicke und/oder Form der Flüssigkeitsfilme zu variieren. Gleiches gilt auch für die
Tropfenbildung und Tropfenführung. Flüssigkeiten lassen sich in Tropfen- bzw. Tröpfchenform mit
Hilfe der Führungsstrukturen führen bzw. daran abrollen, um diese Tropfen der Flüssigkeiten mit
gasförmigen Medien in Kontakt und zur Reaktion zu bringen. Die gasförmigen Medien können
25 alternativ aber auch nur als Schutzatmosphäre genutzt werden.

Wesentlicher Bestandteil des erfindungsgemäßen Reaktors sind die als Drähte, Stäbe, Streifen,
Bänder oder Strangprofile ausgebildeten Führungsstrukturen. Die Formen der Führungsstrukturen,
ihre Größe oder äußeren Abmessungen sowie das für diese Führungsstrukturen verwendete Ma-
30 terial sind abhängig von der Anwendung und Nutzung des erfindungsgemäßen Reaktors, insbe-
sondere von den chemischen und physikalischen Eigenschaften der eingesetzten Flüssigkeiten
und Gase und den Reaktionsbedingungen, wie Temperatur, Druck etc. Die Führungsstrukturen
können im Querschnitt senkrecht zur Längsachse verschiedene Formen aufweisen. Besonders
bevorzugt sind im Querschnitt kreisförmige Drähte. Alternativ können die Führungsstrukturen im
35 Querschnitt senkrecht zur Längsachse aber auch eine elliptische Form, eine quadratische Form,
eine rechteckige Form, eine gleichschenkelig oder ungleichschenkelig dreieckige Form, eine fünfeckige,
eine sechseckige, eine Rautenform, eine gleichmäßige Rhombusform mit gerundeten Ecken
und konkav gewölbten Seitenflächen, eine Kreuzform, eine Kreuzform mit gerundeten Ecken oder

eine Sternform mit sich radial von einem gemeinsamen Mittelpunkt nach außen erstreckenden Stegen, wobei die Stege gerade, gekrümmt oder abgelenkt sein können, aufweisen.

- Bei einer besonderen alternativen Ausführungsform der Erfindung bestehen die Führungsstrukturen aus Drähten, Stäben, Streifen, Bändern oder Strangprofilen mit oberflächenmodifizierten Bereichen. Dabei erstrecken sich über die Länge einer Führungsstruktur eine oder mehrere Bahnen mit Oberflächenbereichen, die eine bessere Benetzbarkeit für die zu verwendende Flüssigkeit aufweisen als die neben diesen Bahnen liegenden Oberflächenbereiche. Mehrere Bahnen gut oder "besser" benetzbarer Bereiche auf einer Führungsstruktur sind voneinander durch "schlechter" benetzbare Oberflächenbereiche getrennt. Die Bahnen auf den Führungsstrukturen können geradlinig oder auch zickzack-förmig, kurvenförmig oder in jeder anderen nicht-geradlinigen Art und Weise auf der Oberfläche verlaufen. Sind mehrere Bahnen auf einer Führungsstruktur vorgesehen, so verlaufen diese vorzugsweise im wesentlichen parallel zueinander. Verfahren zur Modifizierung der Benetzbarkeit von Oberflächen für bestimmte Flüssigkeiten sind dem Fachmann bekannt und sind nicht Gegenstand der Erfindung. Beispiele für Verfahren zur Modifizierung der Oberflächenbenetzbarkeit sind chemische und physikalische Oberflächenbehandlung, wie das Behandeln der Oberfläche mit Säuren oder Basen, Aufrauen oder Glätten der Oberfläche, Beschichten der Oberfläche, z. B. mittels PVD oder CVD, oder Aufbringen eines organischen Polymers. Zwischen benachbarten Führungsstrukturen mit oberflächenmodifizierten Bereichen der oben genannten Art spannen sich die Flüssigkeitsfilme erfindungsgemäß zwischen den besser benetzbaren Bereichen bzw. Bahnen auf den Führungsstrukturen auf. Die schlechter benetzbaren Bereiche bleiben dabei im wesentlichen frei von Flüssigkeit. Sind auf den Führungsstrukturen jeweils mehrere besser benetzbare Bahnen vorgesehen, so erlaubt dies die Führung mehrerer Flüssigkeitsfilme nebeneinander zwischen benachbarten Führungsstrukturen. Gleiches gilt für Tropfen, wobei hier auch mehrere Tropfen an einer einzigen Führungsstruktur geführt werden bzw. entlanglaufen können. Bei der Führung mehrerer Flüssigkeitsfilme nebeneinander zwischen zwei benachbarten Führungsstrukturen können entlang der schlechter bezüglich des Flüssigkeitsfilmes benetzbaren Bereiche auch andere Flüssigkeiten geführt werden. Beispielsweise können nebeneinander Bereiche mit besserer Benetzbarkeit für apolare Flüssigkeiten neben Bereichen mit besserer Benetzbarkeit für polare Flüssigkeiten angeordnet sein. Dies erlaubt die Führung entsprechender Flüssigkeiten wie z. B. organischer Flüssigkeiten unmittelbar neben wässrigen Medien. Auf diese Weise lassen sich ansonsten schwer oder nicht mischbare Flüssigkeiten für eine Reaktion oder einen Stoffaustausch in dem Reaktor in Kontakt bringen.
- In Abhängigkeit von Parametern, wie Oberflächenspannung und gegebenenfalls Kontaktwinkel der verwendeten Flüssigkeiten sowie Geometrie, Abstand, Durchmesser und Dimension der Führungsstrukturen, bilden sich konkave oder konvexe Flüssigkeitsfilme oder auch Flüssigkeitsfilme mit nahezu parallelen Oberflächen aus. Für mikrotechnische Anwendungen liegen die Durchmes-

- 6 -

ser am Beispiel von Drähten mit kreisförmigem Querschnitt als Führungsstrukturen im Bereich von etwa 100 nm bis etwa 1 mm. Für makrotechnisch ausgelegte Reaktoren liegen die Durchmesser der Führungsstrukturen im Bereich von etwa 0,5 mm bis etwa 5 mm.

- 5 Grundsätzlich können die Führungsstrukturen aus allen Materialien hergestellt sein, wie sie auch für die bekannten Reaktoren nach dem Stand der Technik zum Einsatz kommen. Für spezielle Anwendungen ist die Oberflächenbeschaffenheit der Führungsstrukturen von entscheidender Bedeutung. Um einen Fallfilm mit einer spezifischen Flüssigkeit erzeugen zu können, ist erfindungsgemäß je nach Flüssigkeit eine exakt bestimmbare Oberflächenrauheit der Führungsstrukturen
10 notwendig. Bei glatter Führungsstrukturoberfläche, also bei sehr geringer Rauheit erfolgt ein leichtes Abrollen bzw. Weggleiten oder Wegrutschen von Flüssigkeit bzw. Tropfen an einer, zwei oder mehreren Führungsstrukturen.

- Zweckmäßigerweise verlaufen die Führungsstrukturen in Längsrichtung von der Flüssigkeitszuführung in Richtung zu dem Flüssigkeitsauslass geradlinig. Alternative Ausführungsformen mit nicht
15 geradlinig verlaufenden Führungsstrukturen sind jedoch für bestimmte Anwendungen ebenfalls geeignet, z. B. um die Länge der Flüssigkeitsstrecke in dem Reaktor zu vergrößern. Die Führungsstrukturen verlaufen bei diesen alternativen Ausführungsformen vorzugsweise zick-zackförmig, gekrümmt oder schraubenförmig.

- 20 Bei einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors sind wenigstens einige der Führungsstrukturen in dem Reaktor als Hohlprofile ausgebildet. Da die Führungsstrukturen im unmittelbaren Reaktionsraum angeordnet sind, ist so eine Mehrfachnutzung dieser Führungsstrukturen möglich. Die Hohlräume in den Führungsstrukturen können beispielsweise zur
25 Kühlung oder Heizung oder zur Ab- oder Zuführung von Energie genutzt werden. Zweckmäßigerweise sind daher an diesen als Hohlprofile ausgebildeten Führungsstrukturen Zuleitungen und Ableitungen für das Hindurchleiten eines Kühl- oder Heizfluides durch die Führungsstrukturen vorgesehen. Eine solche Temperaturführung ist in allen nutzbaren Temperaturbereichen durchführbar. Besonders effektiv ist sie jedoch bei höheren Temperaturen ab 100°C, weil die Temperatureinstellung bzw. Kontrolle direkt im Reaktionsraum erfolgt und nicht indirekt außerhalb des Reaktorraumes. Für bestimmte Anwendungen kann es weiterhin besonders vorteilhaft sein, wenn in
30 wenigstens einigen der als Hohlprofile ausgebildeten Führungsstrukturen Sensoren, vorzugsweise Drucksensoren und/oder Temperatursensoren, vorgesehen sind. Mittels der Sensoren kann direkt jede Reaktionsphase überwacht werden, so dass beispielsweise über eine Regelung der Flüssigkeits- und/oder Gaszufuhr, der Temperatur oder des Drucks zu jedem Zeitpunkt korrigierend in
35 eine Reaktion eingegriffen werden kann. Die Sensoren bieten die Möglichkeit, direkt das Geschehen im Reaktionsraum bei chemischen Reaktionen aktiv zu verfolgen.

- Bei einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors sind die Führungsstrukturen elektrisch leitend ausgebildet und Anschlüsse für das Verbinden der Führungsstrukturen mit einer Stromquelle vorgesehen. Vorteilhaft weisen dabei jeweils zwei benachbarte Führungsstrukturen entgegengesetzte Polung für das Hindurchleiten eines elektrischen Stromes
- 5 durch einen zwischen den Führungsstrukturen ausgebildeten Flüssigkeitsfilm auf. Alternativ können auch die Führungsstrukturen als ein Pol und ein Teil des Reaktorgehäuses als Gegenpol ausgebildet sein. Wenn in der Flüssigphase, ob als Film oder Tropfen, ein Strom fließt, sind elektrochemische Reaktionen, wie elektrochemische Gas/Flüssig-Reaktionen möglich.
- 10 Das Reaktorgehäuse des erfindungsgemäßen Reaktors kann, wie oben bereits erwähnt, ein offenes oder ein geschlossenes Gehäuse sein. Bevorzugt ist das Reaktorgehäuse jedoch als geschlossenes Gehäuse ausgebildet, welches Zuleitungen und Ableitungen für die entlang der Führungsstrukturen zu leitende Flüssigkeit aufweist. Sollen Reaktionen der Flüssigkeit mit einem oder mehreren weiteren Medien (Gase oder Flüssigkeiten) durchgeführt werden, so weist das Reaktor-
- 15 gehäuse zweckmäßigerweise weitere Zuleitungen und Ableitungen für das Hindurchleiten von Gas und Flüssigkeit durch das Reaktorgehäuse auf. Diese letztgenannten Zuleitungen und Ableitungen sind an dem Reaktorgehäuse vorteilhaft so angeordnet, dass ein durch das Reaktorgehäuse hindurchgeleitetes Gas oder eine Flüssigkeit im wesentlichen senkrecht zur Längsrichtung der Führungsstrukturen, d. h. der Hauptströmungsrichtung der daran geführten Flüssigkeit strömt. Die
- 20 Zuführung weiterer Medien kann aber auch mit Vorteil parallel zu der Zuführung der an den Führungsstrukturen geführten Flüssigkeit erfolgen, so dass diese Medien zusammen mit der Flüssigkeit strömen.
- Die Flüssigkeit, welche entlang der Führungsstrukturen strömen soll, wird gleichmäßig verteilt zum
- 25 Anfang der Reaktionszone im Inneren des Reaktors geleitet, wo sie auf definierte bzw. einstellbare Zwischenräume zwischen wenigstens zwei Führungsstrukturen trifft. Ist die Anordnung der Führungsstrukturen entsprechend der verwendeten Flüssigkeit, der Form und Oberfläche der Führungsstrukturen richtig ausgewählt, so bildet die eingeleitete Flüssigkeit um die Führungsstrukturen, z. B. Drähte, durch Kapillarkräfte einen Flüssigkeitsfilm, spannt sich zwischen den Führungs-
- 30 strukturen auf und bewegt sich unter der Schwerkraft oder mittels anderer Antriebskräfte, wie z. B. besonders bevorzugt durch elektroosmotischem Fluss oder Kapillarkräften, entlang der Führungsstrukturen. Es ist klar, dass es für einen effektiven Durchsatz von Vorteil ist, mehrere Führungsstrukturen für eine Vielzahl von aufgespannten Flüssigkeitsfilmen oder von Tropfen parallel oder in anderer Anordnung in dem Reaktorgehäuse vorzusehen.
- 35 Die flüssige Komponente, die entlang der Führungsstrukturen von der Flüssigkeitszuführung in Richtung zu einem Flüssigkeitsauslass geleitet wird, wird vorzugsweise mit Hilfe der Schwerkraft angetrieben. Für einen Antrieb der Flüssigkeit durch die Schwerkraft ist es besonders zweckmä-

- 8 -

ßig, wenn sich die Führungsstrukturen in dem Reaktorgehäuse von der Flüssigkeitszuführung in Richtung zu dem Flüssigkeitsauslass bezüglich der Vertikalen abwärts erstrecken. Besonders bevorzugt ist es, wenn die Führungsstrukturen im wesentlichen vertikal angeordnet sind. Dadurch wird gewährleistet, dass die Schwerkraft als antreibende Kraft für die Flüssigkeit voll wirksam wird.

- 5 Um die Verweildauer der Flüssigkeit im Reaktor für länger andauernde Reaktionen zu erhöhen wird erfindungsgemäß ein Neigen bis nahe an eine horizontale Ausrichtung der Führungsstrukturen empfohlen. Bei einer horizontalen Ausrichtung muss die Flüssigkeit durch eine Druckdifferenz, einen Gasstrom oder eine andere Antriebskraft als die Schwerkraft angetrieben werden. Besonders bei mikrotechnischen Reaktoren treten Volumeneffekte, wie die Schwerkraft, gegenüber
- 10 Oberflächeneffekten in den Hintergrund, auch bei vertikaler oder nur leicht geneigter Anordnung der Führungsstrukturen. Gerade bei Mikroreaktoren ist es daher bevorzugt, die Flüssigkeit durch Antriebskräfte zu transportieren, die auf solchen Oberflächeneffekten beruhen, wie elektroosmotischer Fluss. Zusätzlich oder alternativ anwendbare Antriebskräfte für die Flüssigkeitsströmung sind Kapillarkräfte, Druckdifferenz, Temperaturdifferenz, Gasstrom usw. und werden nachfolgend
- 15 ausführlicher beschrieben.

- Der Antrieb der Flüssigkeitsfilme oder Tropfen in dem Reaktor entlang der Führungsstrukturen kann durch einen in das Reaktorgehäuse eingeleiteten Gasstrom erfolgen, z. B. indem Tropfen durch die von Gas ausgeübten Scherkräfte transportiert werden. Dies hätte den Vorteil hoher
- 20 Stoff- und Wärmetransferkoeffizienten von der Gas- in die Flüssigphase.

- Des weiteren kann der Antrieb der Flüssigkeit durch Bereitstellung eines Temperaturgradienten entlang der Führungsstrukturen erfolgen. Es besteht die Möglichkeit, den Transport von Flüssigkeitsfilmen oder Tropfen durch die Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannung zu steuern.
- 25 Der Kontaktwinkel von Tropfen zur Oberfläche eines Drahtes oder einer anderen Führungsstruktur hängt von der lokalen Temperatur sowie der Oberflächenrauheit ab, so dass ein Tropfen vom schlechter zum besser benetzbaren Bereich angetrieben wird. In einem Flüssigkeitsfilm kann es durch Temperaturgradienten zur Marangoni-Konvektion kommen. Die Oberflächenspannungskräfte hängen wesentlich von der Temperatur ab, so dass Flüssigkeit in die Bereiche mit geringerer
- 30 Oberflächenspannung transportiert wird.

- Eine weitere erfindungsgemäß geeignete Antriebsmöglichkeit für die Flüssigkeit besteht darin, geladene oder elektrisch polarisierte Tropfen durch ein elektrisches Feld im Reaktorgehäuse an den Führungsstrukturen entlang zu ziehen bzw. zu transportieren.

35

Wie oben bereits erwähnt, ist eine weitere erfindungsgemäß geeignete Antriebsmöglichkeit für einen Flüssigkeitsfilm oder einen Tropfen der elektroosmotische Fluss (EOF), durch den es möglich ist, die Flüssigkeit entlang der Drähte zu transportieren. Die Flüssigkeit enthält dabei Ionen,

die sich an der Oberfläche der Führungsstrukturen anheften. Dadurch enthält der Flüssigkeitsfilm eine Ladung und kann durch eine elektrische Potentialdifferenz transportiert werden. Es wurde herausgefunden, dass in diesem Fall das Strömungsprofil im Flüssigkeitsfilm einem Plug-Flow-Profil sehr nahe kommt, so dass der Effekt der hydrodynamischen Dispersion, welcher die Verweilzeitverteilung eines Konzentrations-Tracers im Film verbreitert, minimiert wird. Zudem kann man durch EOF den Film häufig mit höherer Geschwindigkeit transportieren als durch Schwerkraft.

Um einen dünnen Flüssigkeitsfilm über längere Zeit stabil aufrecht zu erhalten, ist es notwendig die zugeführte und nachgeführte Menge an Flüssigkeit, die Geschwindigkeit und den Druck möglichst konstant zu halten. Speziell bei schmalen Filmen, die bei geringem Abstand der Führungsstrukturen ausgebildet werden, besteht jedoch auch alternativ die Möglichkeit, den erfindungsgemäßen Reaktor mit einer Druckdifferenz zu betreiben und damit den Durchsatz bzw. den Durchfluss über Regulierung des Drucks einstellbar zu gestalten. Der Antrieb der Flüssigkeit kann auch in einer Kombination von Schwerkraft und Druckdifferenz oder in irgendeiner anderen Kombination der vorgenannten Antriebsmöglichkeiten bestehen.

Die für die Herstellung des Reaktors geeigneten Materialien sind von der Nutzung bzw. der Art und Weise des Betriebes abhängig. Bevorzugte Materialien für das Reaktorgehäuse und mit Flüssigkeit oder Gas in Berührung kommende Bauteile sind Edelstahl und besonders bevorzugt höherwertige Stahlsorten, die eine breite Palette von möglichen Einsatzbedingungen erfüllen, wie Temperaturen von -200°C bis 800°C oder Unterdrücke von bis zu 10^5 Pa bzw. Überdrücke von bis zu 10^7 Pa oder mehr. Auch für eine Vielzahl von Flüssigkeiten bzw. Gasen sind Edelstahl und höherwertige Stahlsorten geeignet.

Für einfache Anwendungen, wie die Abbildung von Flüssigkeitsfilmen oder Tropfenablaufsimulationen usw., die ebenfalls mit dem erfindungsgemäßen Reaktor durchgeführt werden können, sind Plexiglas oder andere durchsichtige Materialien für das Reaktorgehäuse und andere Bauteile geeignet, wenn die erzielten Temperaturen und die übrigen Bedingungen die Verwendung solcher Materialien zulassen.

Eine weitere vorteilhafte Anwendungsmöglichkeit des erfindungsgemäßen Reaktors sind Screeningtechnologien, wie das Auffinden von Katalysatoren für chemische Reaktionen. Bei einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors sind daher die Führungsstrukturen bzw. Drähte als feste Katalysatoren ausgebildet. Hierbei bestehen die Führungsstrukturen entweder vollständig aus Katalysatormaterial oder sind zumindest als Träger auf ihrer Oberfläche mit Katalysatormaterial beschichtet. Ein weiterer Vorteil besteht darin, dass die Führungsstrukturen schnell und einfach ausgetauscht und damit verschiedene Katalysatoren getestet werden können. Alternativ können auch verschiedene Führungsstrukturen im gleichen Reaktor unter-

schiedliche Katalysatormaterialien aufweisen, so dass Paralleluntersuchungen an verschiedenen Feststoffkatalysatoren möglich sind.

Der erfindungsgemäße Reaktor erlaubt in flexibler Art und Weise Reaktionsbedingungen experimentell zu bestimmen bzw. zu simulieren. So lassen sich beispielsweise die für eine bestimmte Reaktion erforderliche Verweilzeit und die Konzentrationen von Reaktanden exakt bestimmen, bevor eine Reaktion im Synthesemaßstab durchgeführt wird. Dies bietet die Möglichkeit, die Bildung von unerwünschten Nebenprodukten zu reduzieren oder zu vermeiden.

- 10 In dem erfindungsgemäßen Reaktor lässt sich eine Vielzahl verschiedener Gas/Flüssig-, Flüssig/Flüssig-, Fest/Flüssig- oder nur Flüssig-Reaktionen durchführen. Beispiele für Gas/Flüssig-Reaktionen sind die Fluorierung von Toluol mit Fluorgas oder die Sulfonierung von Aromaten mit Schwefeltrioxid. Beispiele für Flüssig/Flüssig-Reaktionen sind Veresterungen mit zwei Phasen, z. B. nach dem Schotten-Baumann-Verfahren. Beispiele für schnelle Flüssig-Reaktionen sind nukleophile Substitutionen, elektrophile Substitutionen, wie Nitrierungen von Aromaten, Veresterungen, Amidierungen etc. Mit besonderem Vorteil lassen sich in dem erfindungsgemäßen Reaktor auch photochemische Reaktionen durchführen. Die spezielle Flüssigkeitsführung gewährleistet dabei eine nahezu 100%ige Verfügbarkeit der Flüssigkeit. Beispiele für photochemische Reaktionen sind Cycloadditionen, Radikalbildung und -umsetzung oder Dekompositionsreaktionen. Alle hierin aufgeführten Reaktionen und die nachfolgend beschriebenen Anwendungsmöglichkeiten, sind gleichberechtigt mit dem erfindungsgemäßen Reaktor realisierbar bzw. durchführbar. Die hierin beispielhaft ausführlich beschriebene Nutzung des Reaktors für Gas/Flüssig-Reaktionen findet gleichermaßen auch auf alle anderen der oben beschriebenen Reaktionstypen Anwendung. Die beschriebene Gaskomponente kann durch eine oder in speziellen Anwendungen auch durch mehrere nicht mischbare Flüssigphasen bzw. Flüssigkeiten ersetzt sein.

Weitere Vorteile, Merkmale und Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Reaktors werden anhand der nachfolgenden Beschreibung einiger Beispiele und der dazugehörigen Figuren deutlich.

- 30 Figuren 1a, 1b zeigen schematische perspektivische Ansichten verschiedener Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Reaktors.
- Figuren 2a, 2b zeigen schematische Ansichten alternativer Ausführungsformen von Halteinrichtungen für Führungsstrukturen im Reaktor von oben.
- 35

- Figur 2c zeigt eine schematische Ansicht einer weiteren alternativen Ausführungsform einer Halteeinrichtung für die Führungsstrukturen in dem Reaktor von vorne.
- 5 Figur 3 zeigt eine schematische Teilansicht von zwei erfindungsgemäßen Führungsstrukturen mit dazwischen aufgespanntem Flüssigkeitsfilm.
- Figuren 4a bis f zeigen Draufsichten auf die Führungsstrukturen aus Figur 3 mit verschiedenen herstellbaren Formen des Flüssigkeitsfilms bzw. Tropfens.
- 10 Figuren 5a bis m zeigen Querschnittsansichten verschiedener erfindungsgemäßer Führungsstrukturen von oben.
- Figur 6 zeigt verschiedene Ansichten von als Hohlprofil ausgebildeten Führungsstrukturen.
- 15 Figuren 7a bis d zeigen verschiedene alternative Verlaufsformen der Führungsstrukturen über ihrer Länge.
- 20 Figuren 8a, 8b zeigen alternative Anordnungen der erfindungsgemäßen Führungsstrukturen.
- Figuren 9a, 9b zeigen weitere alternative Anordnungen der erfindungsgemäßen Führungsstrukturen.
- 25 Figur 10 zeigt eine schematische Darstellung zur Neigungseinstellung des Reaktors.
- Figuren 11a, 11b zeigen Anwendungen für den erfindungsgemäßen Reaktor.
- 30 Figur 12 zeigt eine beispielhafte Darstellung einer weiteren alternativen Anwendung für den erfindungsgemäßen Reaktor.
- Figur 13 zeigt verschiedene Ausführungsformen erfindungsgemäßer Führungsstrukturen mit oberflächenmodifizierten Bereichen.
- 35 Figur 1a zeigt eine schematische perspektivische Ansicht einer Ausführungsform des erfindungsgemäßen Führungsstrukturreaktors 1 mit einem Reaktorgehäuse, welches eine Flüssigkeitseinlaßeinheit 2, Reaktorseitenwände 2' und eine Flüssigkeitsauslaßeinheit 2" umfaßt. Der Reaktor 1

- 12 -

ist in Figur 1a geöffnet mit Blick in den Reaktorraum 7 dargestellt. Die Flüssigkeitseinlaßeinheit 2 des Reaktorgehäuses weist eine Flüssigkeitseinlaßöffnung 4 für das Einleiten von Flüssigkeit 3 in das Gehäuse auf. Unterhalb der Flüssigkeitseinlaßeinheit sind in dem Reaktorgehäuse Führungsstrukturhalteteile 12 angeordnet, an denen die bei der Ausführungsform gemäß Figur 1 als Drähte ausgebildeten Führungsstrukturen 6 befestigt sind. Die Führungsstrukturen 6 erstrecken sich in dem Reaktionsraum 7 vom Flüssigkeitseinlaß in Richtung des Flüssigkeitsauslasses und können am Flüssigkeitsauslaß ebenfalls an entsprechenden Halteteilen oder an der Flüssigkeitsauslass-einheit befestigt sein. Sie können aber auch frei herabhängen. Die Führungsstrukturhalteteile 12 weisen Verteileröffnungen 5 auf, durch welche die eingeleitete Flüssigkeit 3 den Führungsstruk-turen 6 zugeleitet wird. Bei der Ausführungsform gemäß Figur 1a sind die Führungsstrukturen 6 im wesentlichen parallel und mit gleichen Abständen zueinander angeordnet. Die Verteileröffnungen 5 sind jeweils im wesentlichen mittig über dem Abstand zwischen zwei Führungsstrukturen ange-ordnet. Flüssigkeit 3, die durch die Flüssigkeitseinlaßöffnung 4 in das Reaktorgehäuse eingeleitet wird, verteilt sich zunächst über dem plattenförmig ausgebildeten Führungsstrukturhalteteil 12 und fließt dann durch die Verteileröffnungen 5 in dem Führungsstrukturhalteteil 12 zu den Führungs-strukturen 6. Aufgrund der vertikalen Anordnung des Reaktors 1 und der Zuführung der Flüssigkeit 3 von oben wird die Flüssigkeit bei der Ausführungsform gemäß Figur 1a im wesentlichen durch die Schwerkraft angetrieben. Nach dem Austritt der Flüssigkeit 3 aus den Verteileröffnungen 5 wird die Flüssigkeit aufgrund der Adhäsionskräfte zunächst einmal an der Unterseite des Füh-rungsstrukturhalteteils 12 und dann zu den jeweils benachbarten Führungsstrukturen unterhalb einer Verteileröffnung 5 geleitet. An den Flüssigkeitsstrukturen 6 spannt sich aufgrund der Adhäsio-nskräfte und der Oberflächenspannung der Flüssigkeit zwischen benachbarten Führungsstruktu-ren 6 ein Flüssigkeitsfilm 3a auf, der von der Schwerkraft angetrieben herab durch den Reaktions-raum 7 in Richtung der Flüssigkeitsauslaßeinheit 2" strömt.

Das Reaktorgehäuse der Ausführungsform gemäß Figur 1 weist an den Seitenwänden jeweils zwei Reaktionsgaseinlaßöffnungen 10, 10' und zwei Reaktionsgasauslaßöffnungen 11, 11' auf. In der beispielhaften Darstellung gemäß Figur 1a wird ein Reaktionsgas 9 durch die Reaktionsgas-einlaßöffnung 10 in das Reaktorgehäuse in den Reaktionsraum 7 eingeleitet und durch die in ver-tikaler Richtung tiefer angeordnete Reaktionsgasauslaßöffnung 11' abgeführt. In diesem Beispiel sind die Öffnungen 10' und 11 verschlossen, jedoch können der Gaseinlaß und der Gasauslaß auch an beliebigen Kombinationen der Öffnungen 10, 10', 11 und 11' erfolgen. Es können auch beispielsweise verschiedene Gase durch die Reaktionsgaseinlaßöffnungen 10 bzw. 10' gleichzei-tig oder nacheinander eingeführt und durch die Reaktionsgasauslaßöffnungen 11 bzw. 11' abge-führt werden. Anstelle eines Reaktionsgases 9 kann auch ein inertes Gas als Schutzgas eingelei-tet werden.

- 13 -

Am unteren Ende des Reaktorgehäuses befindet sich die Flüssigkeitsauslaßeinheit 2". Figur 1a zeigt hiervon zwei verschiedene Ausführungsvarianten. Die in der linken Hälfte der Abbildung dargestellte Flüssigkeitsauslaßeinheit 2" ist im Inneren des Reaktors mit schräg in Richtung einer einzigen mittig angeordneten Flüssigkeitsauslaßöffnung 4' zusammenlaufenden Innenflächen versehen. Die in der rechten Hälfte der Abbildung dargestellte Flüssigkeitsauslaßeinheit 2" (alternative Ausführungsform) weist mehrere Flüssigkeitsauslaßöffnungen 4" unmittelbar unterhalb der einzelnen Führungsstrukturen 6 auf. Nachdem die Flüssigkeit 3 bzw. der Flüssigkeitsfilm 3a den Reaktionsraum 7 durchlaufen hat, wobei beispielsweise eine Umsetzung mit dem Reaktionsgas 9 stattgefunden hat, wird die Flüssigkeit an der Flüssigkeitsauslaßeinheit 2" je nach Ausführungsform durch die Flüssigkeitsauslassöffnung/en 4' bzw. 4" abgeführt.

Figur 1b zeigt eine alternative Ausführungsvariante zu Figur 1a, bei der die Führungsstrukturen 6 alle die gleiche Länge besitzen und an einem unteren Führungsstrukturhalteteil 12' befestigt sind. Das untere Führungsstrukturhalteteil 12' ist entsprechend dem oberen Führungsstrukturhalteteil 12 mit Bohrungen für den Ablauf der Flüssigkeit versehen. Das untere Führungsstrukturhalteteil 12' kann für ein Vorspannen der Führungsstrukturen 6 in vertikaler Richtung verschiebbar sein. Die Flüssigkeitsauslaßeinheit 2" am unteren Ende des Reaktorgehäuses ist in zwei unterschiedlichen Ausführungsvarianten dargestellt. Beide Ausführungsvarianten sind im Inneren des Reaktors mit schräg in Richtung einer einzigen mittig angeordneten Flüssigkeitsauslaßöffnung 4' zusammenlaufenden Innenflächen versehen. Die in der linken Hälfte der Abbildung dargestellte Ausführungsvariante weist eine steiler verlaufende Schräge zur Flüssigkeitsauslaßöffnung 4' hin auf als die in der rechten Hälfte der Abbildung dargestellte Flüssigkeitsauslaßeinheit 2" (alternative Ausführungsform).

Die Figuren 2a und 2b zeigen zwei verschiedene Ausführungsformen von Führungsstrukturhalteteilen 12a und 12b mit jeweils daran befestigten Führungsstrukturen 6, wobei jeweils die Führungsstrukturhalteteile 12b in Richtung der in den Figuren dargestellten Pfeile beweglich angeordnet sind. Durch die Bewegung der Führungsstrukturhalteteile 12b läßt sich die Position der daran befestigten Führungsstrukturen gegenüber den an den Führungsstrukturhalteteilen 12a befestigten Führungsstrukturen verändern. Das Führungsstrukturhalteteil 12b aus Figur 2a ist senkrecht zum Führungsstrukturhalteteil 12a von diesem weg bzw. zu diesem hin bewegbar, wodurch sich der Abstand der einander gegenüberliegenden Führungsstrukturen 6 variabel einstellen läßt. Für die Bewegbarkeit der Führungsstrukturhalteteile 12b sind Einstellmechanismen 13 daran vorgesehen. Bei der Ausführungsform gemäß Figur 2b ist das Führungsstrukturhalteteil 12b parallel zu dem Führungsstrukturhalteteil 12a verschiebbar ausgebildet. Durch einen entsprechenden Einstellmechanismus, dessen Konstruktion im Bereich des handwerklichen Könnens des Fachmanns liegt, lassen sich auch beide Bewegungsrichtungen gleichzeitig realisieren (nicht dargestellt). Durch die Veränderung der Position des beweglichen Führungsstrukturhalteteils 12b bzw. der daran befe-

stigten Führungsstrukturen 6 gegenüber den Führungsstrukturen 6 am Führungsstrukturhalteteil 12a lassen sich Form und Dicke der zwischen benachbarten Führungsstrukturen 6 ausgebildeten Flüssigkeitsfilme verändern.

- 5 Figur 2c zeigt von vorne zwei Führungsstrukturen 6 mit dazwischen strömendem Flüssigkeitsfilm 3a, wobei die Führungsstrukturen 6 an Führungsstrukturhalteteilen 12a, 12b, 12c und 12d befestigt sind. Die Führungsstrukturhalteteile 12b und 12d lassen sich in der in Figur 2c horizontalen Richtung gegenüber den Führungsstrukturhalteteilen 12a und 12c verschieben, was durch entsprechende Doppelpfeile dargestellt ist, welche Einstellmechanismen 13 repräsentieren. Darüber
10 hinaus lassen sich die Führungsstrukturhalteteile 12c und 12d in vertikaler Richtung Y verschieben, wodurch sich die Vorspannung der Führungsstrukturen 6 verändern läßt.

- Figur 3 ist eine schematische Teilansicht zweier Führungsstrukturen 6 mit daran entlangströmender Flüssigkeit 3, die aufgrund von Adhäsionskräften an den Führungsstrukturen 6 haftet und zwischen diesen einen Flüssigkeitsfilm 3a aufspannt. Die Länge L der Führungsstrukturen 6 ist variabel wählbar, und der Abstand X zwischen diesen Führungsstrukturen ist frei einstellbar. Figur 3
15 verdeutlicht, wie ein Reaktionsgas 9 die an den Führungsstrukturen 6 entlangströmende Flüssigkeit 3 und den dazwischen aufgespannten Flüssigkeitsfilm 3a allseitig anströmen kann.

- 20 Figur 4 zeigt eine Draufsicht zweier Führungsstrukturen 6, wie sie in Figur 3 dargestellt sind. Die Figuren 4a bis f verdeutlichen verschiedene mögliche Formen, welche die Flüssigkeit als Flüssigkeitsfilm 3a (Figuren 4a bis d) bzw. als Tropfen (Figuren 4e und f) annehmen kann. Die Form des Flüssigkeitsfilmes 3a bzw. die Ausbildung von Tropfen werden maßgeblich vom Abstand der Führungsstrukturen 6 und den Eigenschaften der Flüssigkeit selbst, wie Viskosität, Dichte, Kapillarkräfte und Oberflächenspannung, beeinflußt. Des weiteren beeinflußt das Material der Führungsstrukturen und dessen Oberflächenrauheit die Ausbildung des Flüssigkeitsfilmes bzw. der Tropfen.
25 Figur 4a zeigt eine konkave Form des Flüssigkeitsfilmes 3a. Figur 4b zeigt eine gewölbte Form des Flüssigkeitsfilmes 3a, die sowohl hängend als auch aufliegend transportiert werden kann. Figur 4c zeigt einen Flüssigkeitsfilm mit im wesentlichen parallelen einander gegenüberliegenden
30 Flüssigkeitsoberflächen. Figur 4d zeigt eine ovale Form des Flüssigkeitsfilmes 3a. Figur 4e zeigt die Tropfenführung zwischen zwei Führungsstrukturen, wobei die Tropfen auf den Führungsstrukturen aufliegend oder an diesen hängend transportiert werden können. Figur 4f zeigt die Tropfenführung an nur einer Führungsstruktur.

- 35 Figur 5a bis m zeigt verschiedene erfindungsgemäß geeignete Führungsstrukturen im Querschnitt von oben. Die erfindungsgemäß besonders bevorzugte Form ist der kreisförmige Querschnitt (Figur 5a). Weitere geeignete Formen sind ein quadratisches Querschnittsprofil (Figur 5b), ein sechseckiges Querschnittsprofil (Figur 5c), ein rechteckiges Querschnittsprofil (Figur 5e), eine

- 15 -

Rautenform (Figur 5f), eine elliptische oder ovale Form (Figur 5g) oder eine Dreiecksform (Figur 5h). Eine runde Form mit einem Steg (Figur 5d) kann bei zwei benachbarten Führungsstrukturen geeignet sein, um den Flüssigkeitsfilm sehr dünn bis zu wenigen Mikrometern Dicke einstellen zu können. Die Anströmfläche für das Gas auf den Flüssigkeitsfilm kann hier beidseitig etwa waagrecht eingestellt werden. Bei der Ausführungsform gemäß Figur 5i sind drei gleichmäßig verteilte Stege um einen gemeinsamen Mittelpunkt um 120° versetzt angeordnet. Bei der Ausführungsform gemäß Figur 5k, welche derjenigen aus Figur 5i ähnelt, sind die Stege mittig nochmals abgeknickt. Figur 5l zeigt eine Querschnittsform eines gleichmäßigen Rhombus mit runden Ecken und nach innen gewölbten Seitenflächen. Figur 5m zeigt ein Querschnittsprofil mit einer Kreuzform mit abgerundeten Ecken.

Figur 6 zeigt eine erfindungsgemäße alternative Ausführungsform der Führungsstrukturen 6, welche hier als Hohlprofile ausgebildet und auf der linken Seite in Figur 6 im Querschnitt von oben und auf der rechten Seite schematisch im Querschnitt von der Seite dargestellt sind. Zwischen den als Hohlprofile ausgebildeten Führungsstrukturen 6 ist ein herabströmender Flüssigkeitsfilm 3a dargestellt. Zur Beheizung der Führungsstrukturen 6 kann der Hohlraum darin mit einem flüssigen oder gasförmigen Heiz- oder Kühlmedium 14 durchströmt werden. Zusätzlich oder alternativ dazu können in dem Hohlraum einiger der Führungsstrukturen 6 Sensoren 15, wie Drucksensoren oder Temperatursensoren, untergebracht sein.

Die Figuren 7a bis d zeigen alternative Anordnungen der Führungsstrukturen für eine parallele Führung (Figur 7a), eine zickzackförmige Führung (Figur 7b), eine kurvenförmige Führung (Figur 7c) und eine schraubenförmige Führung (Figur 7d) des Flüssigkeitsfilmes. Die Führungswege gemäß den Figuren 7b bis d erlauben eine Verweilzeitverlängerung der Flüssigkeit in dem Reaktor durch Verlängerung der Wegstrecke.

In den Figuren 8a und b sind alternative Anordnungen der Führungsstrukturen 6 in Dreiecksanordnung (Figur 8a) bzw. Vierecksanordnung (Figur 8b) dargestellt. Die Abstände der benachbarten, jeweils ein Dreieck bzw. ein Viereck bildenden Führungsstrukturen 6 sind im wesentlichen gleich, so daß sich zwischen allen benachbarten Führungsstrukturen mit gleichen Abständen Flüssigkeitsfilme 3a aufspannen und dabei einen von Flüssigkeit umgebenen Kanal ausbilden. Die Flüssigkeitsfilme werden von außen von einem Gas 9 umströmt, wobei auch in dem von Flüssigkeit gebildeten Kanal ein Gas 9a strömen kann. Die Gase 9 und 9a können gleich oder verschieden sein.

Die Figuren 9a und 9b zeigen weitere alternative Anordnungen von Führungsstrukturen 6 in einem Reaktorgehäuse. Gemäß Figur 9a sind mehrere Führungsstrukturen in zwei konzentrischen Kreisen bzw. Vielecken angeordnet, wobei benachbarte Führungsstrukturen 6 eines Kreises im we-

- 16 -

sentlichen gleiche Abstände haben und sich jeweils zwischen zwei benachbarten Führungsstrukturen Flüssigkeitsfilme aufspannen. Die Flüssigkeitsfilme sind von Reaktionsgas 9 und 9a umströmt, wobei das in dem Raum zwischen den beiden konzentrischen Kreisen strömende Gas 9a das gleiche oder ein anderes Gas sein kann als das Gas 9. Figur 9b zeigt eine alternative Ausführungsform, wobei auch die Führungsstrukturhalteteile 12 dargestellt sind.

Figur 10 ist eine schematische Darstellung der stufenlosen Neigungseinstellung des erfindungsgemäßen Reaktors 1 um eine Drehachse 16, wobei der Reaktor 1 auf der linken Seite in Figur 10 vertikal und auf der rechten Seite in Figur 10 horizontal angeordnet ist. Jeder Neigungswinkel zwischen 0° und 90° zur Horizontalen ist einstellbar. Auf diese Weise läßt sich die Flüssigkeitsführung in dem Reaktor, insbesondere der Einfluß der Schwerkraft auf den Antrieb der Flüssigkeit, variieren.

Figur 11a zeigt schematisch die Anordnung mehrerer erfindungsgemäßer Reaktoren 1, wobei zwei parallel angeordnete Reaktoren 1, gefolgt von einer Mischeinheit 17 und einem sich daran anschließenden weiteren Reaktor 1 dargestellt sind. Diese Reaktoren 1 können gleich oder unabhängig voneinander mit gleichen oder verschiedenen Antriebsmöglichkeiten für die zugeführten Flüssigkeiten bzw. Medien betrieben werden.

Figur 11b zeigt zwei in Reihe angeordnete erfindungsgemäße Reaktoren 1, deren Neigung über Drehachsen 16 individuell verstellbar ist.

Figur 12 zeigt eine Gesamtanordnung, bei der eine oder mehrere, gleiche oder verschiedene flüssige Medien L1, L2 über Druckwächter 18 zu einer Mischeinheit 17 transportiert und anschließend in den erfindungsgemäßen Reaktor eingeleitet werden. Dem Reaktor können Reaktionsgase oder Reaktionsflüssigkeiten über die Ein- und Auslaßöffnungen g1 bis g6 zu- bzw. abgeführt werden. Nach Austritt der umgesetzten Flüssigkeit wird diese einer Verweilstrecke 19 und anschließend über Ventile 20 einem Gaschromatographen 21 zugeführt. Ein nachgeschalteter Druckwächter 18 kann hierbei eine Steuerfunktion übernehmen, um gegebenenfalls die Flüssigkeitszuführungen zu nachgeschalteten Anordnungen zu steuern.

Figur 13 zeigt verschiedene Ausführungsformen von erfindungsgemäßen Führungsstrukturen 6 mit Bereichen unterschiedlicher Benetzbarkeit 22, 23 für die eingesetzte Flüssigkeit. Die Bereiche besserer Benetzbarkeit 22 erstrecken sich in Bahnen über die gesamte Länge der Führungsstrukturen 6. Dazwischen verlaufen Bereiche schlechterer Benetzbarkeit 23. Figur 13a zeigt eine Führungsstruktur 6 mit nur einer Bahn besserer Benetzbarkeit 22 von vorne und von oben. Entsprechend zeigt Figur 13 eine Führungsstruktur 6 mit mehreren parallel angeordneten Bahnen besserer Benetzbarkeit 22 von vorne und von oben. Zwischen benachbarten Führungsstrukturen 6

- 17 -

spannen sich Flüssigkeitsfilme 3a zwischen den besser benetzbaren Bereichen 22 auf. Die schlechter benetzbaren Bereiche 23 bleiben von Flüssigkeit im wesentlichen frei. Die Ausführungsform gemäß Figur 13b erlaubt auch das Hindurchleiten eines Gases oder einer weiteren Flüssigkeit durch die von zwei Flüssigkeitsfilmen und den benachbarten Führungsstrukturen gebildeten Kanäle. Es ist klar, dass die Führungsstrukturen gemäß den Figuren 13a und 13b auch auf ihren Rückseiten mit entsprechenden Bahnen 22 und 23 versehen sein können, so dass mehrere Führungsstrukturen hintereinander mit sich dazwischen aufspannenden Flüssigkeitsfilmen angeordnet sein können. Bei der Ausführungsvariante gemäß Figur 13c sind die Führungsstrukturen zusätzlich noch auf angrenzenden Seitenflächen mit Bahnen besserer und schlechterer Benetzbarkeit versehen. Dies erlaubt die Anordnung von vier Führungsstrukturen, wobei sich jeweils zwischen zwei benachbarten Führungsstrukturen Flüssigkeitsfilme unter Ausbildung eines größeren Kanals aufspannen. Durch diesen Kanal kann ein Reaktionsgas oder auch eine Flüssigkeit geleitet werden.

Bezugszeichenliste

	1	Führungsstruktureaktor
	2	Flüssigkeitseinlasseinheit
5	2'	Reaktorseitenwände
	2''	Flüssigkeitsauslasseinheit
	3	Flüssigkeit
	3a	Flüssigkeitsfilm
	4	Flüssigkeitseinlassöffnung
10	4', 4''	Flüssigkeitsauslassöffnung
	5	Verteileröffnungen
	6	Führungsstruktur
	7	Reaktionsraum
	9	Reaktionsgas
15	10, 10'	Reaktionsgaseinlassöffnungen
	11, 11'	Reaktionsgasauslassöffnungen
	12, 12'	Führungsstrukturhalteteil
	13	Einstellmechanismus
	14	Heiz- oder Kühlmedium
20	15	Sensoren
	17	Mischeinheit
	18	Druckwächter
	19	Verweilstrecke
	20	Ventil
25	21	Gaschromatograph
	22	oberflächenmodifizierte Bereiche besserer Benetzbarkeit
	23	oberflächenmodifizierte Bereiche schlechterer Benetzbarkeit

Patentansprüche

1. Reaktor mit Führungsstrukturen für die Erzeugung und Leitung von Flüssigkeitsfilmen (3a) oder Flüssigkeitstropfen durch eine Reaktionsstrecke in einem Reaktorgehäuse, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Führungsstrukturen (6) als Drähte, Stäbe, Strangprofile, Streifen, Bänder oder Hohlprofile ausgebildet sind und sich in dem Reaktorgehäuse von einer Flüssigkeitszuführung in Richtung zu einem Flüssigkeitsauslass erstrecken.
2. Reaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass jeweils wenigstens zwei benachbarte der als Drähte, Stäbe, Strangprofile, Streifen, Bänder oder Hohlprofile ausgebildeten Führungsstrukturen (6) im wesentlichen parallel und in einem Abstand zueinander angeordnet sind.
3. Reaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass jeweils wenigstens zwei benachbarte der als Drähte, Stäbe, Strangprofile, Streifen, Bänder oder Hohlprofile ausgebildeten Führungsstrukturen (6) in Längsrichtung von der Flüssigkeitszuführung in Richtung zu dem Flüssigkeitsauslass mit zunehmendem oder abnehmendem Abstand zueinander angeordnet sind.
4. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass der Abstand so gewählt ist, dass die Flüssigkeit zwischen den benachbarten Führungsstrukturen einen zusammenhängenden Flüssigkeitsfilm ausbilden kann.
5. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass Mittel zum variablen Einstellen des Abstandes zwischen benachbarten Führungsstrukturen vorgesehen sind.
6. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass die Führungsstrukturen im Querschnitt senkrecht zur Längsachse eine Kreisform, eine elliptische Form, eine quadratische Form, eine rechteckige Form, eine gleichschenkelig oder ungleichschenkelig dreieckige Form, eine fünfeckige, eine sechseckige, eine Rautenform, eine gleichmäßige Rhombusform mit gerundeten Ecken und konkav gewölbten Seitenflächen, eine Kreuzform, eine Kreuzform mit gerundeten Ecken oder eine Sternform mit sich radial von einem gemeinsamen Mittelpunkt nach außen erstreckenden Stegen, wobei die Stege gerade, gekrümmt oder abgelenkt sein können, aufweisen.

- 20 -

7. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Führungsstrukturen in Längsrichtung von der Flüssigkeitszuführung in Richtung zu dem Flüssigkeitsauslass geradlinig verlaufen.
- 5 8. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Führungsstrukturen in Längsrichtung von der Flüssigkeitszuführung in Richtung zu dem Flüssigkeitsauslass zick-zack-förmig, gekrümmt oder schraubenförmig verlaufen.
9. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass wenigstens
10 einige der Führungsstrukturen in dem Reaktor als Hohlprofile ausgebildet sind.
10. Reaktor nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass an wenigstens einigen der als Hohlprofile ausgebildeten Führungsstrukturen Zuleitungen und Ableitungen für das Hindurchleiten eines Kühl- oder Heizfluides durch die Führungsstrukturen vorgesehen sind.
- 15 11. Reaktor nach einem der Ansprüche 9 oder 10, dadurch gekennzeichnet, dass in wenigstens einigen der als Hohlprofile ausgebildeten Führungsstrukturen Sensoren, vorzugsweise Drucksensoren und/oder Temperatursensoren, vorgesehen sind.
- 20 12. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass die Führungsstrukturen elektrisch leitend ausgebildet sind und Anschlüsse für das Verbinden der Führungsstrukturen mit einer Stromquelle, wobei jeweils zwei benachbarte Führungsstrukturen entgegengesetzte Polung für das Hindurchleiten eines elektrischen Stromes durch einen zwischen den Führungsstrukturen ausgebildeten Flüssigkeitsfilm aufweisen.
- 25 13. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, dass das Reaktorgehäuse als geschlossenes Gehäuse ausgebildet ist und Zuleitungen (10) und Ableitungen (11) für das Hindurchleiten von Gas oder Flüssigkeit, vorzugsweise Gas, durch das Reaktorgehäuse aufweist.
- 30 14. Reaktor nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass die Zuleitungen (10) und Ableitungen (11) so angeordnet sind, dass ein durch das Reaktorgehäuse hindurchgeleitetes Gas oder eine Flüssigkeit im wesentlichen senkrecht zur Längsrichtung der Führungsstrukturen strömt.
- 35 15. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, dass sich die Führungsstrukturen in dem Reaktorgehäuse von der Flüssigkeitszuführung in Richtung zu dem Flüssigkeitsauslass bezüglich der Vertikalen abwärts erstrecken.

16. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 15, dadurch gekennzeichnet, dass die Führungsstrukturen in dem Reaktorgehäuse von der Flüssigkeitszuführung in Richtung zu dem Flüssigkeitsauslass im wesentlichen vertikal angeordnet sind.
- 5 17. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 16, dadurch gekennzeichnet, dass in dem Reaktorgehäuse an oder in der Nähe wenigstens einiger, vorzugsweise aller der Führungsstrukturen Vorrichtungen zur Erzeugung eines elektrischen Wechselfeldes vorgesehen sind.
- 10 18. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 17, dadurch gekennzeichnet, dass in dem Reaktorgehäuse Vorrichtungen zur Erzeugung eines elektrischen Feldes über die Länge der Führungsstrukturen vorgesehen sind.
- 15 19. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 18, dadurch gekennzeichnet, dass in dem Reaktorgehäuse an wenigstens einigen, vorzugsweise allen der Führungsstrukturen Mittel zur Erzeugung eines Temperaturprofils in den Führungsstrukturen über ihre Länge oder zur Erzeugung von lokaler Aufheizung der Führungsstrukturen vorgesehen sind.
- 20 20. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 18, dadurch gekennzeichnet, dass in dem Reaktorgehäuse an oder in der Nähe wenigstens einiger, vorzugsweise aller der Führungsstrukturen Mittel zur Erzeugung eines Temperaturprofils in der an den Führungsstrukturen entlangströmenden Flüssigkeit oder zur Erzeugung von lokaler Aufheizung der Flüssigkeit vorgesehen sind.
- 25 21. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 20, dadurch gekennzeichnet, dass die Führungsstrukturen in dem Reaktorgehäuse vorgespannt sind.

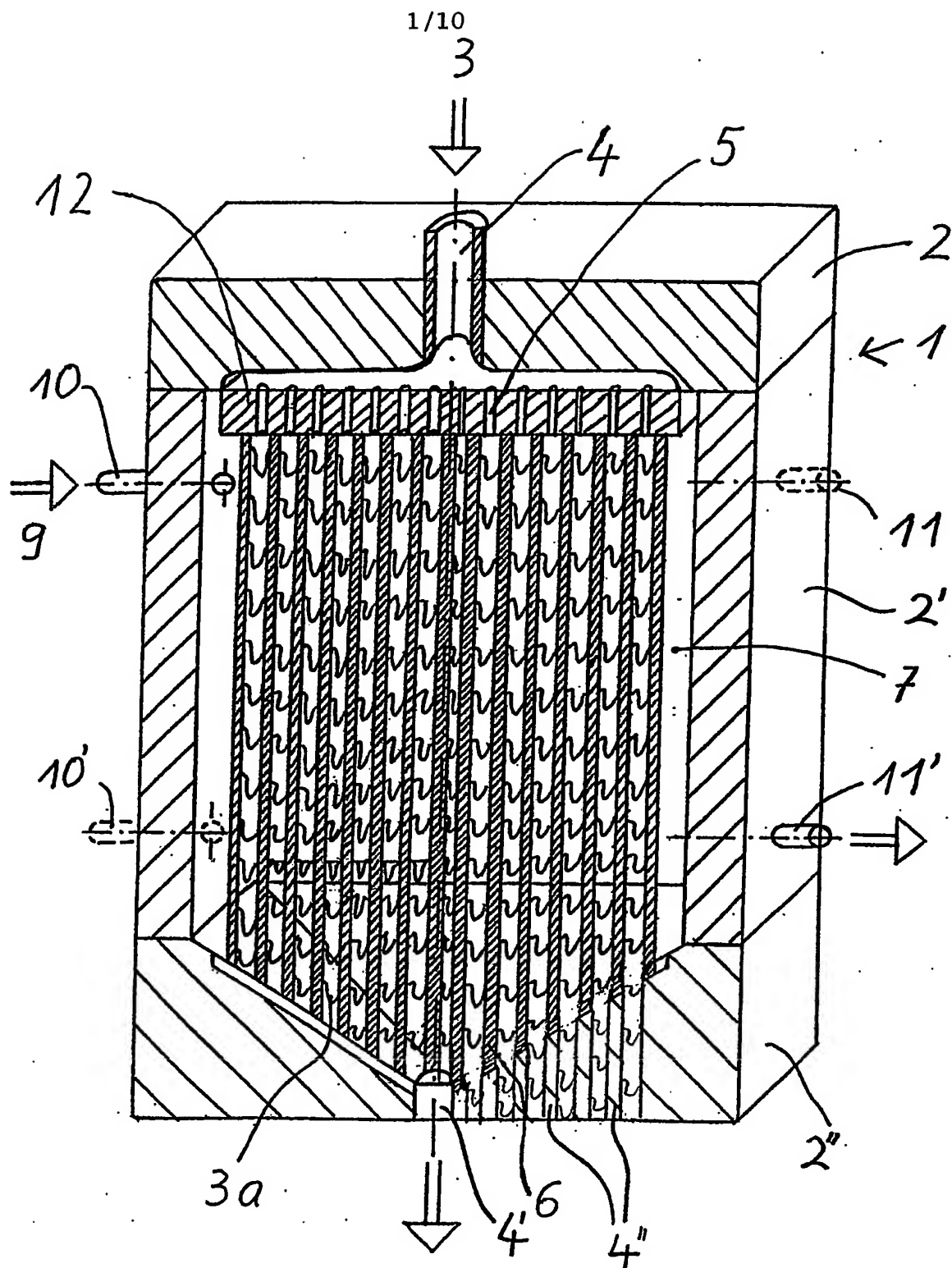


Fig. 1a

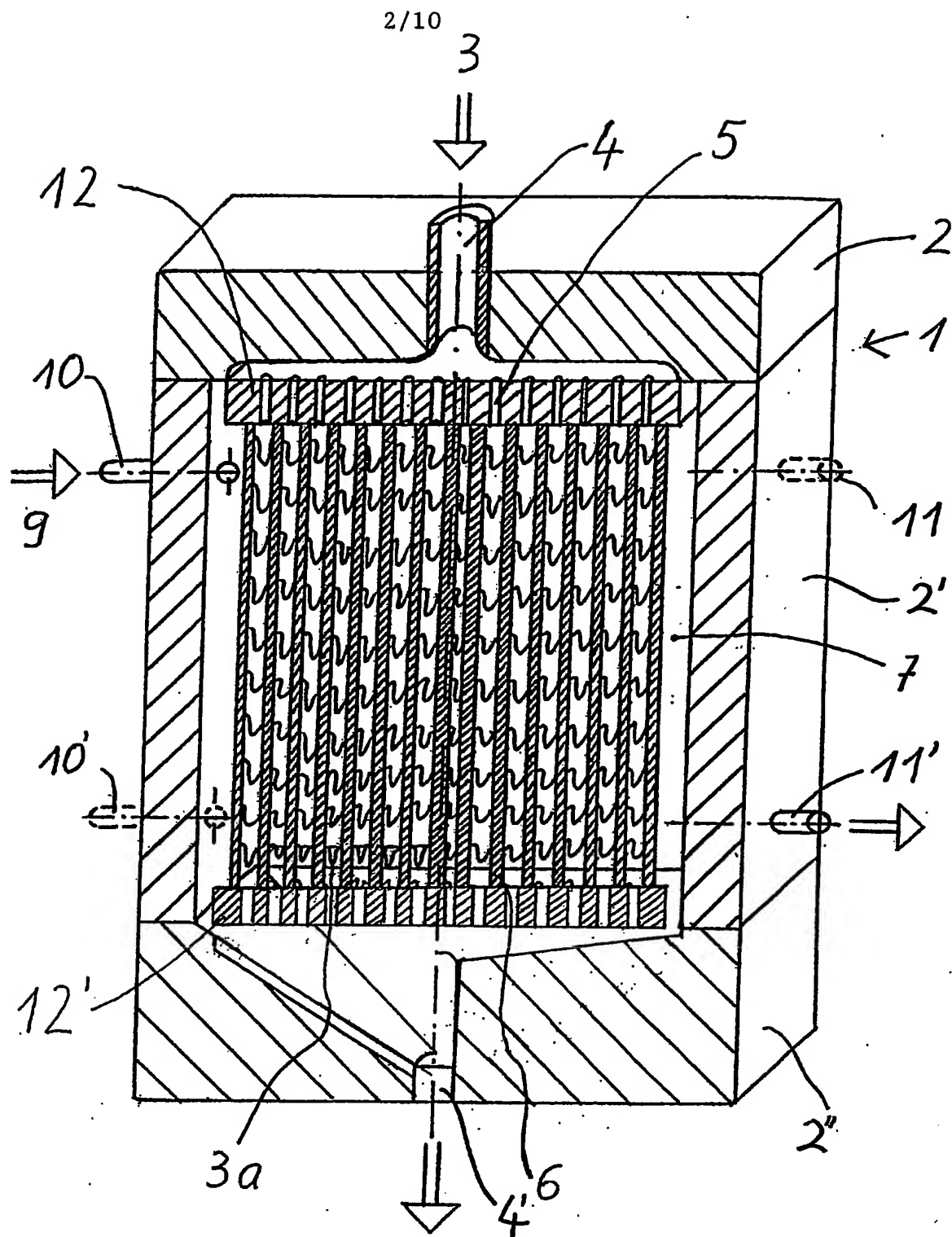


Fig. 1b

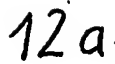


Fig. 2a

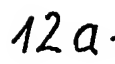


Fig. 2b

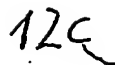


Fig. 2c

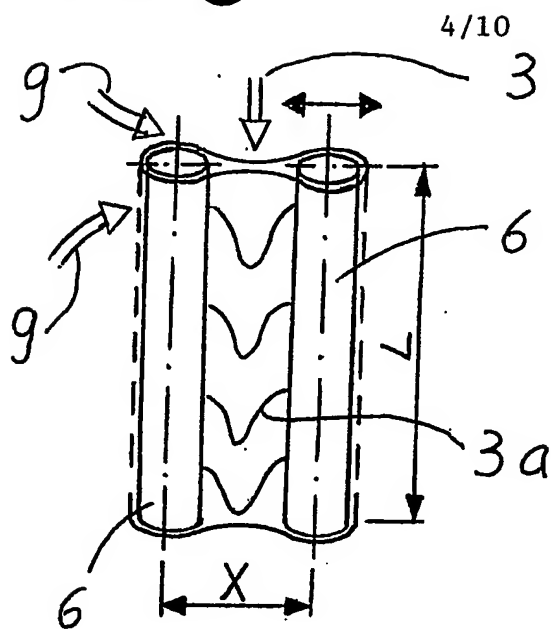


Fig. 3

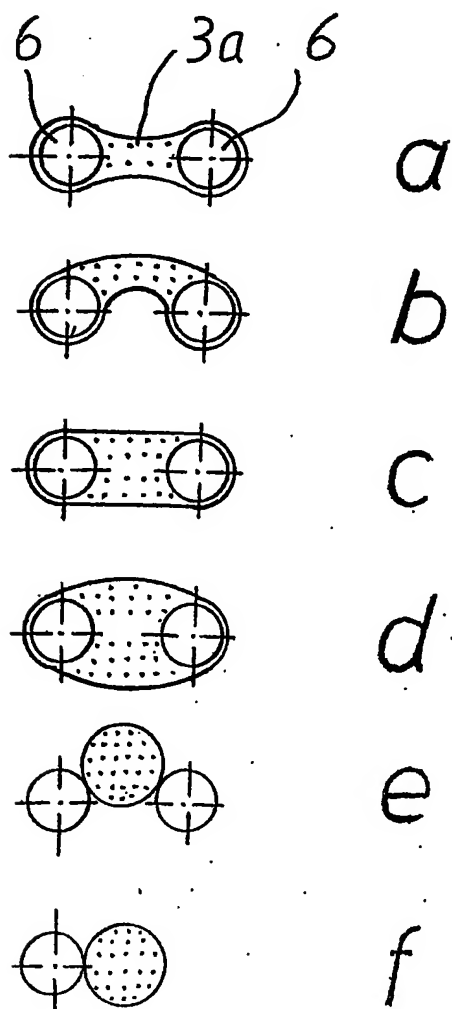
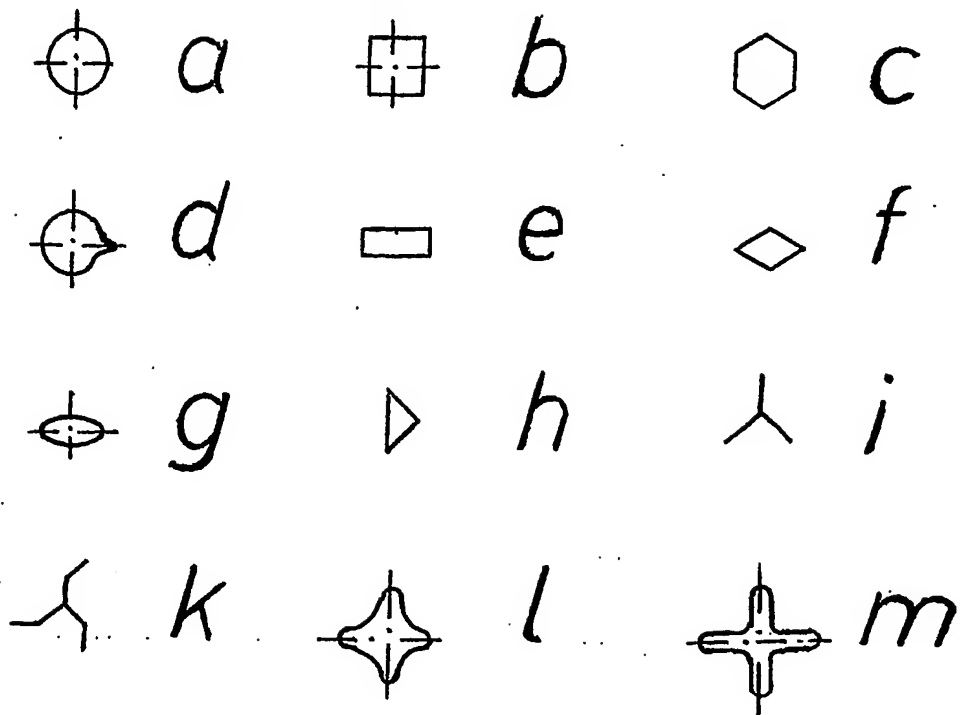
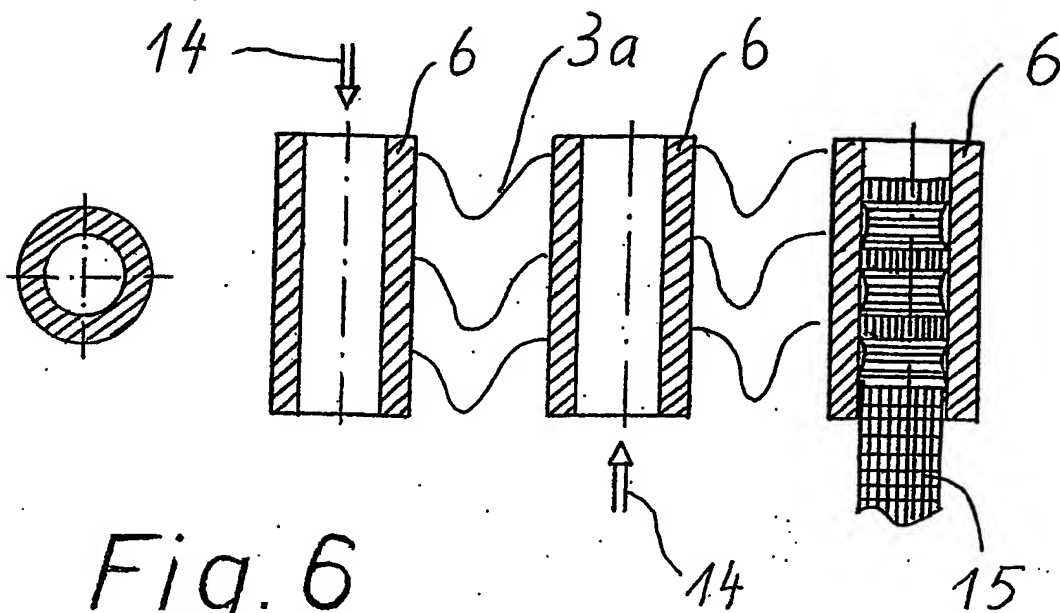


Fig. 4

5/10

Fig. 5Fig. 6

6/10

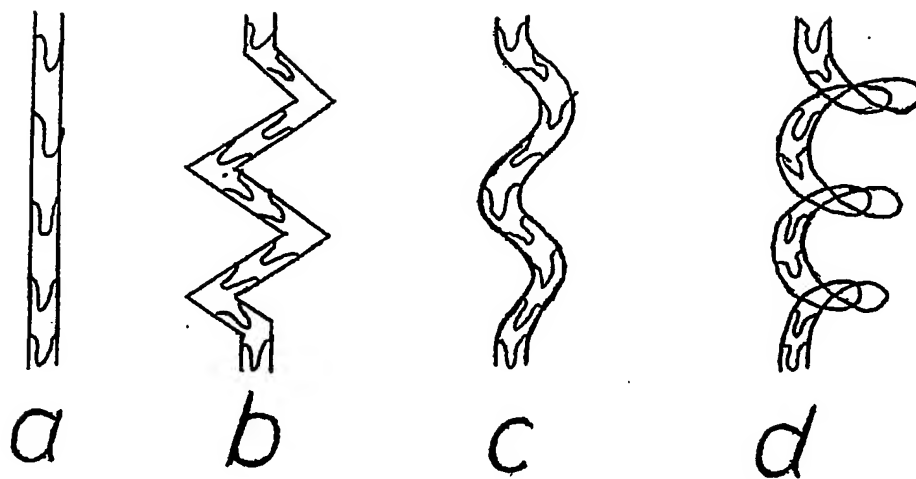


Fig. 7

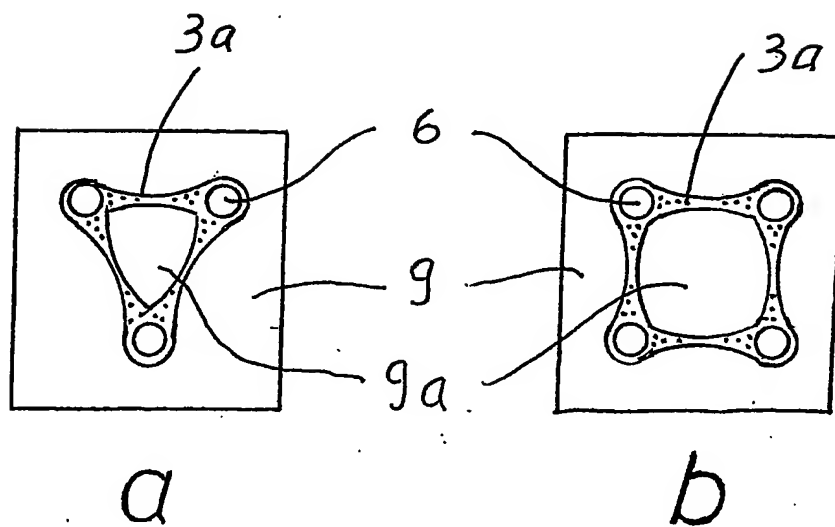
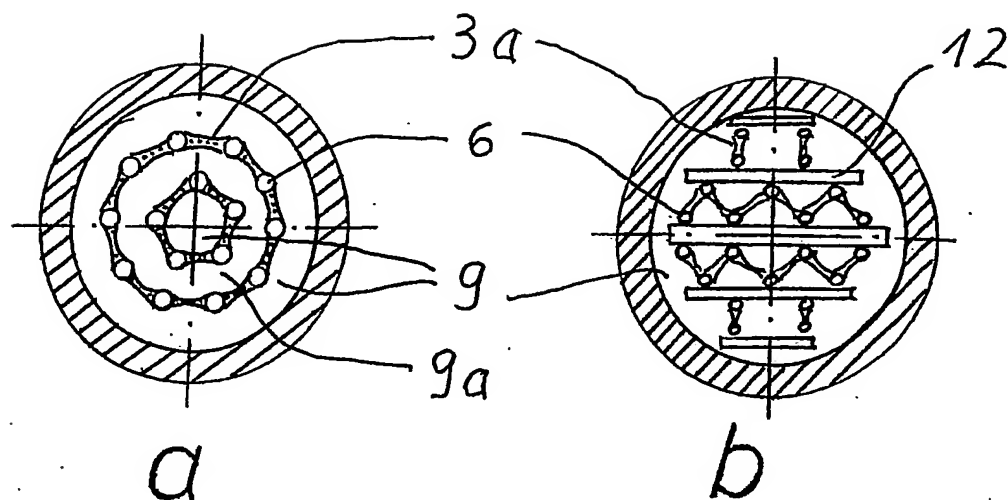
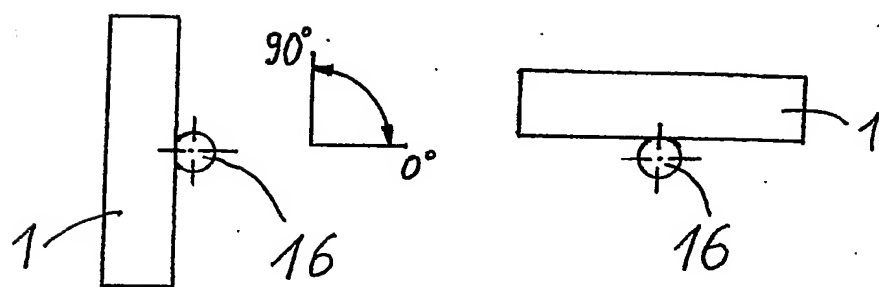


Fig. 8

7/10

Fig. 9Fig. 10

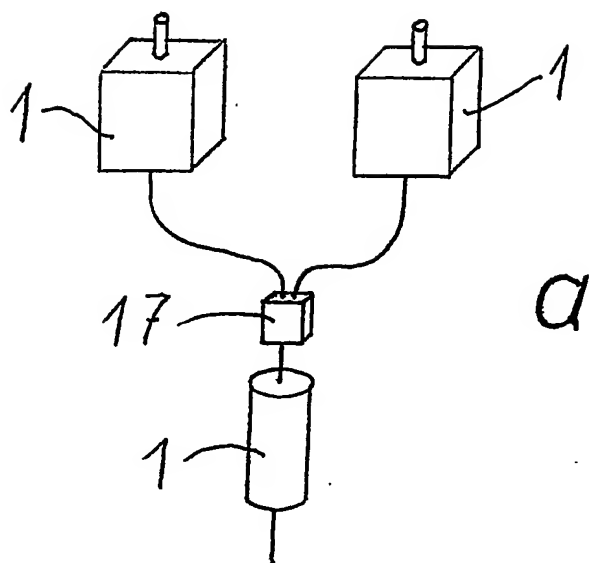
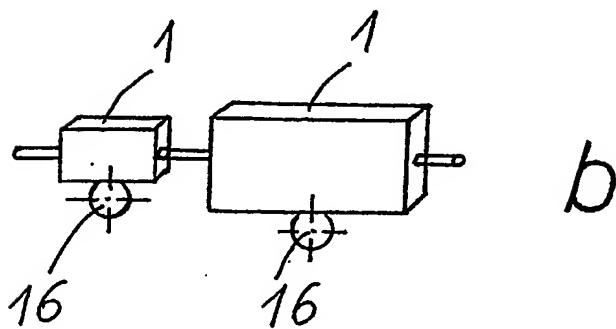
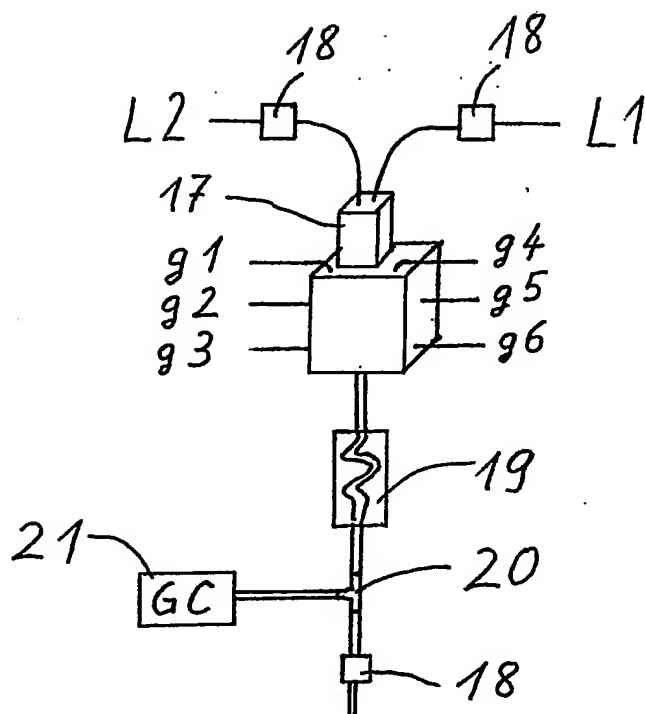


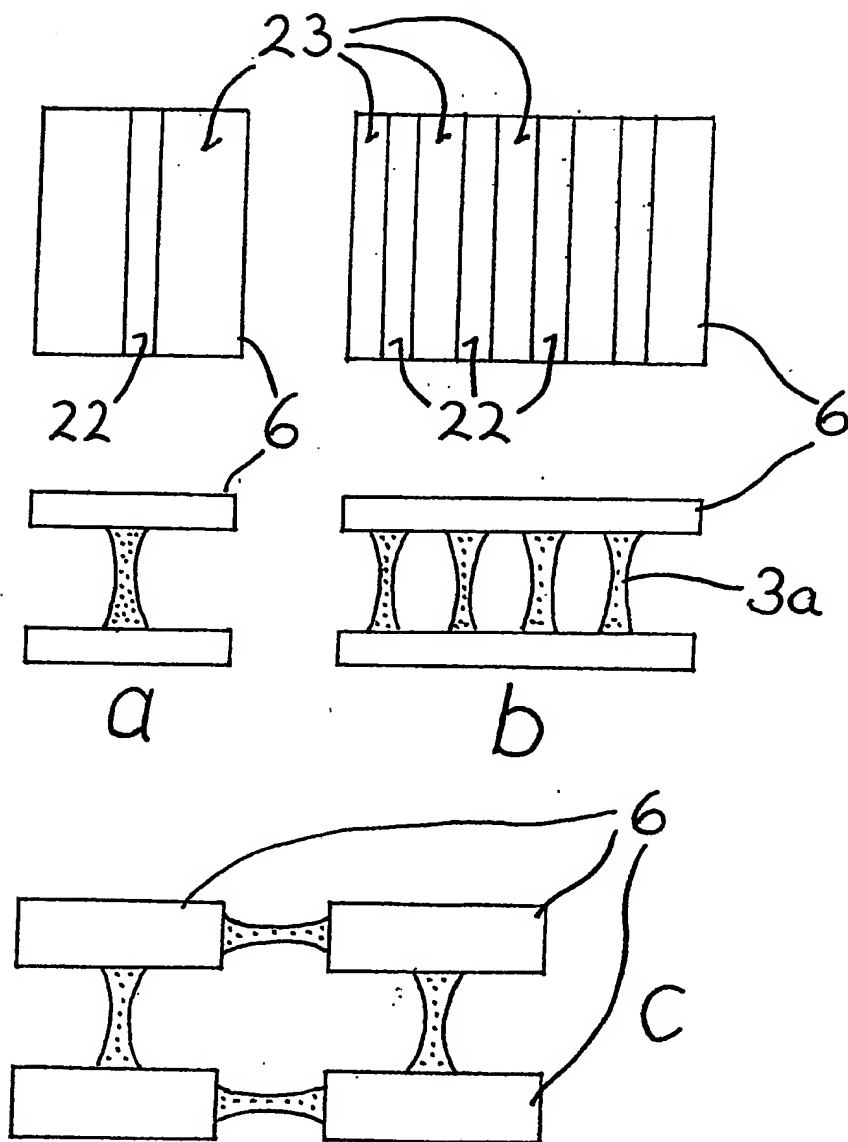
Fig. 11



9/10

Fig.12

10/10

Fig. 13

INTERNATIONALE RESEARCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/02266

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 B01J19/32 B01J10/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RESEARCHIERTE GEBIETE

Researchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 B01J

Researchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die researchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 01 28648 A (MANTEUFEL ROLF P C) 26. April 2001 (2001-04-26) das ganze Dokument	1-3, 5-8, 12-18
X	US 4 224 257 A (ROBINSON ELBERT W) 23. September 1980 (1980-09-23) das ganze Dokument	1, 2, 5, 6, 8, 13-15, 21
X	GB 171 507 A (JEAN HENRI BREGEAT) 24. November 1921 (1921-11-24) das ganze Dokument	1, 2, 4, 6, 8, 9, 13, 15, 21
X	US 2 981 665 A (HANS-JOACHIM KLOSS) 25. April 1961 (1961-04-25) das ganze Dokument	1, 2, 4, 6-9, 13-16, 21

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

11. August 2003

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

19/08/2003

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Beauftragter

Vlassis, M

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Beitr. Anspruch Nr.
X	EP 1 163 952 A (ECOLE POLYTECH ;SULZER CHEMTECH AG (CH)) 19. Dezember 2001 (2001-12-19) das ganze Dokument -----	1,6,9, 13-16
X	GB 725 308 A (CARBONE LORRAINE SOC D) 2. März 1955 (1955-03-02) das ganze Dokument -----	1,6,9, 10,18-20

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 03/02266

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 B01J19/32 B01J10/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 01 28648 A (MANTEUFEL ROLF P C) 26 April 2001 (2001-04-26) the whole document	1-3, 5-8, 12-18
X	US 4 224 257 A (ROBINSON ELBERT W) 23 September 1980 (1980-09-23) the whole document	1, 2, 5, 6, 8, 13-15, 21
X	GB 171 507 A (JEAN HENRI BREGEAT) 24 November 1921 (1921-11-24) the whole document	1, 2, 4, 6, 8, 9, 13, 15, 21
X	US 2 981 665 A (HANS-JOACHIM KLOSS) 25 April 1961 (1961-04-25) the whole document	1, 2, 4, 6-9, 13-16, 21
-/-		

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

A document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

E earlier document but published on or after the International filing date

L document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

O document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

P document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

T later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

X document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

Y document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

Z document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

11 August 2003

Date of mailing of the international search report

19/08/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Vlassis, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 03/02266

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1 163 952 A (ECOLE POLYTECH ;SULZER CHEMTECH AG (CH)) 19 December 2001 (2001-12-19) the whole document	1,6,9, 13-16
X	GB 725 308 A (CARBONE LORRAINE SOC D) 2 March 1955 (1955-03-02) the whole document	1,6,9, 10,18-20

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 03/02266

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 0128648	A	26-04-2001	AU 7274300 A DE 10051523 A1 DE 10083141 D2 WO 0128648 A1 JP 2003512144 T AU 6599301 A WO 0187448 A1	30-04-2001 10-05-2001 07-11-2002 26-04-2001 02-04-2003 26-11-2001 22-11-2001
US 4224257	A	23-09-1980	IT 1140836 B	10-10-1986
GB 171507	A	24-11-1921	NONE	
US 2981665	A	25-04-1961	DE 1102701 B FR 1193405 A GB 843045 A	23-03-1961 03-11-1959 04-08-1960
EP 1163952	A	19-12-2001	EP 1163952 A1 AU 6000401 A WO 0196008 A1	19-12-2001 24-12-2001 20-12-2001
GB 725308	A	02-03-1955	FR 1073449 A	24-09-1954

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.